

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

THIS PAGE BLANK (USPTO)

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-265915

(43)Date of publication of application : 06.10.1998

(51)Int.Cl.

C22C 38/00

H01F 1/053

H01F 1/06

(21)Application number : 09-094957

(71)Applicant : SUMITOMO SPECIAL METALS CO
LTD

(22)Date of filing : 27.03.1997

(72)Inventor : KANEKIYO HIROKAZU
HIROZAWA SATORU(54) PRODUCTION OF MICROCRYSTALLINE PERMANENT MAGNET ALLOY AND
PERMANENT MAGNET POWDER

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To moderate manufacturing conditions, particularly heat treatment conditions, and to perform stable industrial production by subjecting a molten alloy, which has a composition prepared by regulating the concentration of rare earths in an Nd-Fe-B alloy to a specific value or below and a specific amount of B is contained, to allowing in an inert gas atmosphere with an atmospheric pressure in a specific range by means of liquid quenching using a cooling roll.

SOLUTION: A molten alloy, represented by a composition formula $Fe_{100-x-y}B_xR_y$ (where R is one or more elements among Pr, Nd, Dy, and Tb) in which (x) and (y) satisfy $15 \leq x \leq 30$ atomic % and $1 \leq y \leq 6$ atomic %, respectively, is continuously cast on a rotating cooling roll in an inert gas atmosphere of 31 to 101 kPa. By this procedure, a microcrystalline alloy, having a structure in which a crystalline structure, where an Fe₃B type compound phase of ≤ 10 nm average crystalline grain size, an α -Fe phase, and a compound phase with Nb₂Fe₁₄B type crystalline structure coexist, comprises $\geq 50\%$ and the balance is compound of amorphous structure, is prepared. This alloy is heat-treated at 550 to 750° C and formed into a microcrystalline alloy of 10 to 50 nm average crystalline grain size, and the magnetic alloy having magnetic properties of $iH_c \geq 22$ kOe and $B_r \geq 28$ kG can be obtained.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

28.06.2000

[Date of sending the examiner's decision of
rejection][Kind of final disposal of application other than
the examiner's decision of rejection or
application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision
of rejection][Date of requesting appeal against examiner's
decision of rejection]

A copy of the cited reference(s)

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-265915

(43) 公開日 平成10年(1998)10月6日

(51) Int.Cl.⁶

C 2 2 C 38/00

H 0 1 F 1/053

1/06

識別記号

3 0 3

F I

C 2 2 C 38/00

H 0 1 F 1/04

1/06

3 0 3 D

H

A

審査請求 未請求 請求項の数 5 F D (全 8 頁)

(21) 出願番号 特願平9-94957

(22) 出願日 平成9年(1997)3月27日

(71) 出願人 000183417

住友特殊金属株式会社

大阪府大阪市中央区北浜4丁目7番19号

(72) 発明者 金清 裕和

大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住

友特殊金属株式会社山崎製作所内

(72) 発明者 広沢 哲

大阪府三島郡島本町江川2丁目15-17 住

友特殊金属株式会社山崎製作所内

(74) 代理人 弁理士 押田 良久

(54) 【発明の名称】 微細結晶永久磁石合金及び永久磁石粉末の製造方法

(57) 【要約】

【課題】 希土類濃度が6at%以下で軟磁性の Fe_3B 相と硬磁性である $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 相が同一組織内に混在する微細金属組織を有する準安定構造の永久磁石材料において、製造条件を緩和して安価で安定した工業生産を可能にする。

【解決手段】 合金溶湯を31kPa~101kPaの不活性ガス雰囲気中にて、冷却ロールにより液体急冷することにより、従来、実質90%以上まで非晶質化する必要があった液体急冷条件が緩和され、急冷合金の結晶組織が50%以上を占める液体急冷条件でも、磁気特性の劣化を誘因する結晶粒径数100nm以上の $\alpha\text{-Fe}$ の析出が抑制されると共に、550℃~750℃の温度域にて熱処理を施す際、平均結晶粒径10nm~50nmの Fe_3B 型化合物並びに $\alpha\text{-Fe}$ と $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶構造を有する化合物相が共存し、 $i\text{Hc} \geq 2\text{kOe}$ 、 $\text{Br} \geq 8\text{kG}$ の磁気特性を有する磁石合金を得る微細結晶永久磁石合金を得られる熱処理温度範囲が拡大して、微細結晶永久磁石を安価に量産できる。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 組成式を $\text{Fe}_{100-x-y}\text{B}_x\text{R}_y$ （但しRはPr、Nd、DyまたはTbの1種または2種以上）と表し、組成範囲を限定する記号x、yが下記値を満足する溶湯を、31kPa～101kPaの不活性ガス雰囲気中にて、回転する冷却ロール上に連続的に鑄込み、平均結晶粒径10nm以下の Fe_3B 型化合物並びに $\alpha\text{-Fe}$ と $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶構造を有する化合物相が共存する結晶組織が50%以上を占め、残部が非晶質からなる微細結晶合金を作製し、その後、550℃～750℃の温度域にて熱処理を施すことで、平均結晶粒径10nm～50nmの微細結晶合金となし、 $i\text{Hc} \geq 2\text{kOe}$ 、 $\text{Br} \geq 8\text{kG}$ の磁気特性を有する磁石合金を得る微細結晶永久磁石合金の製造方法。

$$15 \leq x \leq 30 \text{ at } \%$$

$$1 \leq y < 6 \text{ at } \%$$

【請求項2】 組成式を $(\text{Fe}_{1-a}\text{Co}_a)_{100-x-y}\text{B}_x\text{R}_y$ （但しRはPr、Nd、DyまたはTbの1種または2種以上）と表し、組成範囲を限定する記号x、y、mが下記値を満足する溶湯を、31kPa～101kPaの不活性ガス雰囲気中にて、回転する冷却ロール上に連続的に鑄込み、平均結晶粒径10nm以下の Fe_3B 型化合物並びに $\alpha\text{-Fe}$ と $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶構造を有する化合物相が共存する結晶組織が50%以上を占め、残部が非晶質からなる微細結晶合金を作製し、その後、550℃～750℃の温度域にて熱処理を施すことで、平均結晶粒径10nm～50nmの微細結晶合金となし、 $i\text{Hc} \geq 2\text{kOe}$ 、 $\text{Br} \geq 8\text{kG}$ の磁気特性を有する磁石合金を得る微細結晶永久磁石合金の製造方法。

$$15 \leq x \leq 30 \text{ at } \%$$

$$1 \leq y < 6 \text{ at } \%$$

$$0.001 \leq m \leq 0.5$$

【請求項3】 組成式を $\text{Fe}_{100-x-y-z}\text{B}_x\text{R}_y\text{M}_z$ （但しRはPr、Nd、DyまたはTbの1種または2種以上、MはAl、Si、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Pt、Au、Pbの1種または2種以上）と表し、組成範囲を限定する記号x、y、zが下記値を満足する溶湯を、31kPa～101kPaの不活性ガス雰囲気中にて、回転する冷却ロール上に連続的に鑄込み、平均結晶粒径10nm以下の Fe_3B 型化合物並びに $\alpha\text{-Fe}$ と $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶構造を有する化合物相が共存する結晶組織が50%以上を占め、残部が非晶質からなる微細結晶合金を作製し、その後、550℃～750℃の温度域にて熱処理を施すことで、平均結晶粒径10nm～50nmの微細結晶合金となし、 $i\text{Hc} \geq 2\text{kOe}$ 、 $\text{Br} \geq 8\text{kG}$ の磁気特性を有する磁石合金を得る微細結晶永久磁石合金の製造方法。

$$15 \leq x \leq 30 \text{ at } \%$$

$$1 \leq y < 6 \text{ at } \%$$

$$0.01 \leq z \leq 7 \text{ at } \%$$

【請求項4】 組成式を $(\text{Fe}_{1-a}\text{Co}_a)_{100-x-y-z}\text{B}_x\text{R}_y\text{M}_z$ （但しRはPr、Nd、DyまたはTbの1種または2種以上、MはAl、Si、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Pt、Au、Pbの1種または2種以上）と表し、組成範囲を限定する記号x、y、z、mが下記値を満足する溶湯を、31kPa～101kPaの不活性ガス雰囲気中にて、回転する冷却ロール上に連続的に鑄込み、平均結晶粒径10nm以下の Fe_3B 型化合物並びに $\alpha\text{-Fe}$ と $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶構造を有する化合物相が共存する結晶組織が50%以上を占め、残部が非晶質からなる微細結晶合金を作製し、その後、550℃～750℃の温度域にて熱処理を施すことで、平均結晶粒径10nm～50nmの微細結晶合金となし、 $i\text{Hc} \geq 2\text{kOe}$ 、 $\text{Br} \geq 8\text{kG}$ の磁気特性を有する磁石合金を得る微細結晶永久磁石合金の製造方法。

$$15 \leq x \leq 30 \text{ at } \%$$

$$1 \leq y < 6 \text{ at } \%$$

$$0.01 \leq z \leq 7 \text{ at } \%$$

$$0.001 \leq m \leq 0.5$$

【請求項5】 請求項1、請求項2、請求項3または請求項4において、得られた微細結晶永久磁石合金を平均粉末粒径3 μm ～500 μm に粉碎して、 $i\text{Hc} \geq 2\text{kOe}$ 、 $\text{Br} \geq 7\text{kG}$ の磁気特性を有する磁石粉末を得る微細結晶組織を有する等方性永久磁石粉末の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】この発明は、各種小型モーター、アクチュエーター、磁気センサー用磁気回路などに最適な永久磁石合金および永久磁石粉末の製造方法に係り、6at%以下の希土類元素と15at%～30at%のホウ素を含む特定組成の溶湯を、特定の減圧不活性ガス雰囲気中、回転する冷却ロール上に特定組成の合金溶湯を連続的に鑄込むことによって、平均結晶粒径10nm以下の Fe_3B 型化合物並びに $\alpha\text{-Fe}$ と $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶構造を有する化合物相が共存する結晶組織が50%以上を占め、残部が非晶質からなる微細結晶合金を作製し、その後、550℃～750℃の温度域にて熱処理を施すことで、平均結晶粒径を10nm～50nmまで粒成長させることにより、 $i\text{Hc} \geq 2\text{kOe}$ 、 $\text{Br} \geq 8\text{kG}$ の磁気特性を有する永久磁石合金、あるいは永久磁石合金を粉碎することによって、ボンド磁石用磁石粉末として実用に耐える $i\text{Hc} \geq 2\text{kOe}$ 、 $\text{Br} \geq 7\text{kG}$ の磁気特性を有する永久磁石粉末を得ることが可能な微細結晶永久磁石合金及び永久磁石粉末の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】現在、家電用機器、OA機器、電装品等において、より一層の高性能化と小型軽量化が要求され

ており、永久磁石を用いた磁気回路全体として、性能対重量比を最大にするための設計が検討されており、特に現在の生産台数の大半を占めるブラシ付き直流モーターの構造では永久磁石として残留磁束密度 B_r が5kG～7kG程度のものが最適とされているが、従来のハードフェライト磁石では得ることができない。

【0003】例えば、 $Nd_2Fe_{14}B$ を主相とする、Nd-Fe-B焼結磁石やNd-Fe-Bボンド磁石ではかかる磁気特性を満足するが、金属の分離精製や還元反応に多大の工程並びに大規模な設備を要するNdを10at%～15at%含有しているため、ハードフェライト磁石に比較して著しく高価となり、性能対価格比の点でハードフェライト磁石からの代替は一部の機種でしか進んでおらず、現在のところ、5kG以上の B_r を有し、安価な永久磁石材料は見出されていない。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】一方、Nd-Fe-B系磁石において、近年、 $Nd_4Fe_{77}B_{19}$ (at%) 近傍組成で Fe_3B 型化合物を主相する磁石材料が提案 (R. Coehoorn等、J. de Phys., C 8, 1988, 669～670頁) され、その技術内容は米国特許4,935,074等に開示されている。

【0005】また、Koonはそれよりも以前に、Laを必須元素として含むLa-R-B-Feアモルファス合金に結晶化熱処理を施すことによる、微細結晶からなる永久磁石の製造方法を米国特許4,402,770にて提案している。

【0006】最近ではRichterらによってEP特許558691B1に開示されているように、Ndを3.8at%～3.9at%含有するNd-Fe-B-V-Si合金溶湯を回転するCuロール上に噴射して得られたアモルファスフレークを700℃で熱処理することにより、硬磁気特性を有する薄片が得られることを報告している。

【0007】これらの永久磁石材料は、厚み20 μ m～60 μ mのアモルファスフレークに結晶化熱処理を施すことによって得られる、軟磁性である Fe_3B 相と硬磁性である $R_2Fe_{14}B$ 相が混在する結晶集合組織を有する準安定構造の永久磁石材料である。

【0008】かかる永久磁石材料は、10kG程度の B_r と2kOe～3kOeの iH_c を有し、高価なNdの含有濃度が4at%程度と低いいため、配合原料価格は $Nd_2Fe_{14}B$ を主相とするNd-Fe-B磁石より安価ではあるが、配合原料を実質90%以上非晶質合金化するため液体急冷条件が限定され、また、同時に硬磁性材料になり得るための熱処理条件が狭く限定され、工業生産上実用的でなく、ハードフェライト磁石の代替として安価に提供できない。

【0009】他方、米国特許508,266等の超急冷

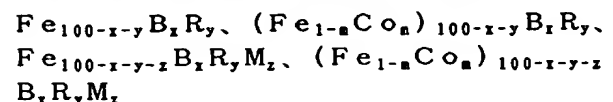
Nd-Fe-B系磁石材料では、合金溶湯をロール周速度20m/s程度で急冷することにより直接、硬磁気特性を有する結晶質からなる組織を得られるが、合金に含有される高価なNd含有量が13at%程度と高いため、ハードフェライト磁石の代替として安価に提供できない。

【0010】この発明は、希土類濃度が6at%以下と低いことを特徴とする軟磁性の Fe_3B 相と硬磁性の $Nd_2Fe_{14}B$ 相が混在する結晶集合組織を有する準安定構造の永久磁石材料において、その製造条件、特に熱処理条件を緩和して安定した工業生産を可能にすることを目的とし、特に8kG以上の残留磁束密度 B_r を有し、ハードフェライト磁石に匹敵する性能対価格比を有する微細結晶永久磁石合金を量産可能にする微細結晶永久磁石合金の製造方法の提供を目的としている。

【0011】

【課題を解決するための手段】発明者らは、軟磁性相と硬磁性相が混在する低希土類濃度のNd-Fe-B系微細結晶永久磁石の製造方法を種々検討した結果、希土類元素の含有量が6at%以下と少なく、15at%～30at%のBを含有する特定組成の合金溶湯を、冷却ロールを用いた液体急冷法により急冷合金化するに際し、31kPa～101kPaの不活性ガス雰囲気中にて、急冷することにより、従来、実質90%以上に非晶質化する必要があった液体急冷条件が緩和され、急冷合金の結晶組織が50%以上を占める液体急冷条件でも、磁気特性の劣化を誘因する結晶粒径数100nm以上の α -Feの析出が抑制されると共に、その後、550℃～750℃の温度域にて熱処理を施す際、平均結晶粒径10nm～50nmの Fe_3B 型化合物並びに α -Feと $Nd_2Fe_{14}B$ 型結晶構造を有する化合物相が共存し、 $iH_c \geq 2kOe$ 、 $B_r \geq 8kG$ の磁気特性を有する磁石合金を得る微細結晶永久磁石合金を得られる熱処理温度範囲が拡大することを知見し、この発明を完成した。

【0012】すなわち、この発明は、組成式を



(但しRはPr、Nd、DyまたはTbの1種または2種以上、MはAl、Si、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Pt、Au、Pbの1種または2種以上)のいずれかで表し、組成範囲を限定する記号x、y、z、mが下記値を満足する溶湯を、31kPa～101kPaの不活性ガス雰囲気中にて、回転する冷却ロール上に連続的に鑄込み、平均結晶粒径10nm以下の Fe_3B 型化合物並びに α -Feと $Nd_2Fe_{14}B$ 型結晶構造を有する化合物相が共存する結晶組織が50%以上を占め、残部が非晶質からなる微細結晶合金を作製し、その後、550℃～750℃の温度域にて熱処理を施すことで、平均結晶粒径10

nm~50nmの微細結晶合金となし、 $iHc \geq 2kOe$ 、 $Br \geq 8kG$ の磁気特性を有する磁石合金を得る微細結晶永久磁石合金の製造方法を提案するものである。

$15 \leq x \leq 30at\%$

$1 \leq y < 6at\%$

$0.01 \leq z \leq 7at\%$

$0.001 \leq m \leq 0.5$

【0013】さらに、この発明は、前述の製造方法にて得られる微細結晶永久磁石合金を平均粉末粒径 $3\mu m \sim 500\mu m$ に粉碎して、 $iHc \geq 2kOe$ 、 $Br \geq 7kG$ の磁気特性を有する磁石粉末を得る微細結晶組織を有する等方性永久磁石粉末の製造方法を併せて提案する。

【0014】

【発明の実施の形態】

組成の限定理由

希土類元素Rは、Pr、Nd、DyまたはTbの1種または2種以上を特定量含有のときのみ、高い磁気特性が得られ、他の希土類、例えばCe、Laでは iHc が $2kOe$ 以上の特性が得られず、また、Tb、およびDyを除くSm以降の中希土類元素、重希土類元素は磁気特性の劣化を招来するため好ましくない。Rは、 $1at\%$ 未満では $2kOe$ 以上の iHc が得られず、また $6at\%$ を越えると $8kG$ 以上のBrが得られないため、 $1at\%$ 以上 $6at\%$ 未満の範囲とする。好ましくは、 $2at\% \sim 5.5at\%$ が良い。

【0015】Bは、 $15at\%$ 未満では液体急冷後の金属組織において、 $\alpha-Fe$ の析出が著しく、保磁力の発現に必須である $Nd_2Fe_{14}B$ 型結晶構造を有する化合物の析出が阻害されるため、 $1kOe$ 未満の iHc しか得られない、また $30at\%$ を越えると減磁曲線の角形性が著しく低下し、 $8kG$ 以上のBrが得られないため、 $15at\% \sim 30at\%$ の範囲とする。好ましくは、 $15at\% \sim 20at\%$ が良い。

【0016】Feは、上述の元素の含有残余を占め、Feの一部をCoで置換することにより金属組織が微細化され、減磁曲線の角形性が改善、及び最大エネルギー積(BH)maxの向上、並びに耐熱性の向上が得られるが、Feに対する置換量が 0.1% 未満ではかかる効果が得られず、また、 50% を越えると $8kG$ 以上のBrが得られないため、CoのFeに対する置換量は $0.1\% \sim 50\%$ の範囲とする。好ましくは、 $0.5\% \sim 10\%$ が良い。

【0017】添加元素MのAl、Si、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Pt、Au、Pbは、微細結晶永久磁石の微細組織化に寄与し、保磁力を改善すると共に、減磁曲線の角形性を改善し、Brおよび(BH)maxを増大する効果が得られるが、 $0.01at\%$ 未満ではかかる効果が得られず、 $7at\%$ 以上では $Br \geq 8kG$ の磁気特性を得られないため、 $0.01at\% \sim 7at\%$ の範囲とす

る。好ましくは、 $0.05at\% \sim 5at\%$ である。

【0018】製造条件の限定理由

この発明において、上述の特定組成の合金溶湯を $31kPa \sim 101kPa$ の範囲の不活性ガス雰囲気中にて、回転する冷却ロール上に連続的に鋳込み、平均結晶粒径 $10nm$ 以下の Fe_3B 型化合物並びに $\alpha-Fe$ と $Nd_2Fe_{14}B$ 型結晶構造を有する化合物相が共存する結晶組織が 50% 以上を占め、残部が非晶質からなる微細結晶合金を作製し、その後、 $550^\circ C \sim 750^\circ C$ の温度域にて熱処理を施すことで、 $iHc \geq 2kOe$ 、 $Br \geq 8kG$ の磁気特性を有する磁石合金を得るに必要な平均結晶粒径 $10nm \sim 50nm$ の微細結晶組織となすことが最も重要である。

【0019】すなわち、合金溶湯の連続鋳造の際、鋳造雰囲気は $101kPa$ を越える場合は、ロールと溶湯間のガス巻き込み、およびロール周辺の風による溶湯流の乱れなどにより、冷却条件が安定しない結晶粒径数 $100nm$ の粗大な $\alpha-Fe$ を含む急冷合金組織となり、 $iHc \geq 2kOe$ 、 $Br \geq 8kG$ の磁気特性が得られず、 $31kPa$ 未満の場合は、合金組成に依存して変化するアモルファス形成能が増大して過急冷となりやすく、熱処理後の磁気特性が安定しないことから、溶湯急冷雰囲気を $31kPa \sim 101kPa$ とする。好ましくは、 $31kPa \sim 80kPa$ が良い。雰囲気ガスは、合金溶湯の酸化防止のため、不活性ガス雰囲気とする。好ましくは、 N_2 、Ar雰囲気中が良い。

【0020】前述の急冷合金は、 $iHc \geq 2kOe$ 、 $Br \geq 8kG$ の磁気特性を有する永久磁石合金を得るのに必要な平均結晶粒径 $10nm \sim 50nm$ の微細結晶からなる金属組織になるよう、結晶粒成長を目的とした熱処理を行う必要があるが、熱処理温度が $550^\circ C$ 未満では粒成長を起こさないため、 $10nm$ 以上の平均結晶粒径が得られない、また $750^\circ C$ を越えると粒成長が著しく iHc 、Brおよび減磁曲線の角形性が劣化し、上述の磁気特性が得られないため、熱処理温度は $550^\circ C \sim 750^\circ C$ に限定する。

【0021】熱処理において、雰囲気は酸化を防ぐためArガス、 N_2 ガスなどの不活性ガス雰囲気中もしくは $1.33Pa$ 以下の真空中が好ましい。磁気特性は熱処理時間には依存しないが、6時間を越えるような場合、若干時間の経過とともにBrが低下する傾向があるため、好ましくは6時間未満が良い。

【0022】合金溶湯の液体急冷連続鋳造処理に用いる冷却ロールの材質は、熱伝導度の点からアルミニウム合金、純銅および銅合金、鉄、真鍮、タングステン、青銅を採用できるが、機械的強度および経済性の点から、CuもしくはFe(但しCu、Feを含む合金でもよい)が好ましく、上記以外の材質では熱伝導が悪いため、充分合金溶湯を冷却できず、数 $100nm$ の粗大な $\alpha-Fe$ および Fe_2B が析出するため、 $iHc \geq 2kOe$ 、

$Br \geq 8 \text{ kG}$ の磁気特性を得られず好ましくない。

【0023】例えば、冷却ロールに中心線粗さ $Ra \leq 0.8 \mu\text{m}$ 、最大高さ $R_{\text{max}} \leq 3.2 \mu\text{m}$ 、10点の平均粗さ $Rz \leq 3.2 \mu\text{m}$ の表面粗度を有するCu製ロールを採用した場合、ロール周速度が 15 m/s を越えると急冷合金中に含まれる結晶組織が50%以下となり、非晶質相が増加するため好ましくなく、また、ロール周速度が 4 m/s 以下の場合、急冷合金の金属組織が不均一となり、熱処理後の磁気特性が安定せず好ましくないため、ロール周速度は、 $4 \text{ m/s} \sim 15 \text{ m/s}$ が良い。

【0024】また、この発明による微細結晶永久磁石合金を $3 \mu\text{m} \sim 500 \mu\text{m}$ の粒度になるよう粉砕することにより、 $iHc \geq 4 \text{ kOe}$ 、 $Br \geq 7 \text{ kG}$ を有する等方性永久磁石磁粉末を得ることができる。粉末粒径が $3 \mu\text{m}$ 未満では磁気特性、特に Br が低下し好ましくなく、また、 $500 \mu\text{m}$ を越えると成形が困難なため、粉砕後の磁粉粒度を $3 \mu\text{m} \sim 500 \mu\text{m}$ に限定する。圧縮成形ボンド磁石用磁粉として利用する場合は $10 \mu\text{m} \sim 300 \mu\text{m}$ が好ましく、射出成形ボンド磁石用磁粉としては $50 \mu\text{m}$ 以下が好ましい。

【0025】この発明による微細結晶永久磁石合金の結晶相は、軟磁性を有する Fe_3B 型化合物ならびに $\alpha\text{-Fe}$ と、 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶構造を有する硬磁性化合物相とが同一組織中に共存し、各構成相の平均結晶粒径が $10 \text{ nm} \sim 50 \text{ nm}$ の範囲の微細結晶集合体からなることを特徴としている。微細結晶永久磁石合金を構成する平均結晶粒径が 50 nm を越えると、 Br および減磁曲線の角形性が劣化し、 $Br \geq 8 \text{ kG}$ の磁気特性を得ることができない。また、平均結晶粒径は細かいほど好ましいが、 10 nm 未満では iHc の低下を引き起こすため、下限を 10 nm とする。

【0026】

【実施例】

実施例1

表1のNo. 1~17の組成となるように、純度99.5%以上のFe、Co、Al、Si、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Pt、Au、Pb、B、Nd、Pr、Dy、Tbの金属を用い、総量が30gとなるように秤量し、底部に直径0.8mmのオリフィスを有する石英るつぼ内に投入し、表1の急冷雰囲気圧に保持したAr雰囲気中で高周

波加熱により溶解し、溶解温度を 1300°C にした後、湯面をArガスにより加圧して室温にて、表1に示す急冷雰囲気およびロール周速度にて回転するCu製冷却ロールの外周面に0.7mmの高さから溶湯を連続して鋳込み幅2mm~3mm、厚み $100 \mu\text{m} \sim 300 \mu\text{m}$ の連続した薄板状の急冷合金を作製した。

【0027】この急冷合金をArガス中で、表1に示す熱処理温度で10分間保持し、その後室温まで冷却して合金を取り出し、幅2~3mm、厚み $50 \mu\text{m} \sim 200 \mu\text{m}$ 、長さ3~5mmの試料を作製し、VSMにて測定した。表2に磁石特性を示す。No. 3~No. 17においてCo、Al、Si、Ti、V、Cr、Mn、Ni、Cu、Ga、Zr、Nb、Mo、Ag、Pt、Au、Pbは各構成相のFeの一部を置換する。

【0028】図1の実施例No. 8における熱処理温度に対する保磁力依存性が示す如く、この発明により得られる急冷合金の保磁力は、熱処理温度に依存する。表3に実施例No. 1~No. 17の急冷合金において、 2 kOe 以上の iHc が得られる熱処理温度域を示す。

【0029】実施例2

表1のNo. 6、No. 7、No. 8、No. 13の急冷合金については、粉砕機を用いて粉砕粒度 $25 \mu\text{m} \sim 300 \mu\text{m}$ 、平均粉末粒径 $150 \mu\text{m}$ になるよう粉砕し、等方性永久磁石粉末を作製した。表4にVSMにて測定した磁石粉末の磁気特性を示す。

【0030】比較例1

表1のNo. 18~No. 21の組成となるように純度99.5%のFe、B、R、Siを用いて表1に示す急冷条件で急冷合金を作製した。得られた急冷合金に熱処理を施し、冷却後に実施例1と同一条件で試料を作製してVSMを用いて磁気特性を評価した。評価結果を表2に示す。

【0031】比較例No. 19の磁気特性は、図1の熱処理温度に対する保磁力依存性が示す如く、熱処理温度に依存するが、保磁力の発現する熱処理温度域は、急冷雰囲気圧 60 kPa にて得られた実施例No. 8に比べ狭い。表3に比較例No. 18~No. 21の急冷合金において、 2 kOe 以上の iHc が得られる熱処理温度域を示す。

【0032】

【表1】

		組成(at%)				ロール 周速度	急冷 雰囲気圧	熱処理 温度
		Fe	B	R	M	m/秒	kPa	℃
実 施 例	1	79.5	18.5	Nd2	-	10	50	590
	2	78.5	18.5	Nd3	-	15	80	620
	3	75+Co3	17.5	Nd3.5+Pr1	-	7	50	640
	4	70+Co2	20	Nd5	V3	7	40	660
	5	77+Co3	15.5	Nd4	Zr0.5	4	40	640
	6	66+Co5	18.5	Nd5.5	Cr5	12	31	700
	7	78	17	Nd3	Al2	8	70	600
	8	76.5	18.5	Nd4	Si1	5	60	680
	9	69	18.5	Nd3.5+Dy1	Mn1	10	80	640
	10	76	20	Nd5	Ni1.5	10	50	660
	11	75	20	Nd2.5+Pr1	Cu1.5	10	50	610
	12	77	18.5	Nd2+Dy2	Nb0.5	10	50	620
	13	75.5	18.5	Nd2+Pr3	Gal	8	40	660
	14	76.5	18.5	Nd4	Ag1	8	40	660
	15	78	18	Nd3.5	Pt0.5	8	40	600
	16	76.5	18.5	Nd4.5	Au0.5	6	55	640
	17	75.5	18.5	Nd4.5+Tb0.5	Pb1	8	35	680
比 較 例	18	78.5	18.5	Nd3	-	30	110	615
	19	76.5	18.5	Nd4	Si1	20	110	660
	20	75.5	18.5	Nd3	-	10	110	620
	21	76.5	18.5	Nd4	Si1	5	110	670

【0033】

【表2】

		磁石特性		
		Br (kG)	iHc (kOe)	(BH)max (MGOe)
本 発 明	1	15.0	2.0	13.5
	2	13.7	2.7	15.0
	3	11.4	4.2	14.7
	4	10.0	6.0	12.2
	5	12.3	4.5	15.5
	6	10.1	6.9	12.9
	7	13.4	3.0	18.7
	8	12.6	3.5	17.3
	9	12.0	4.0	17.1
	10	11.5	4.4	16.6
	11	13.0	3.3	17.5
	12	11.3	5.4	12.8
	13	11.6	4.5	10.9
	14	12.4	3.5	17.2
	15	12.9	3.2	17.6
	16	12.1	4.1	17.2
	17	11.0	5.6	12.7
比 較 例	18	13.5	2.5	14.8
	19	12.4	3.8	16.5
	20	9.3	1.4	5.2
	21	4.2	0.9	3.2

【0034】

【表3】

		熱処理温度 ℃
実 施 例	1	580 ~ 650
	2	600 ~ 680
	3	610 ~ 700
	4	620 ~ 720
	5	615 ~ 690
	6	630 ~ 740
	7	590 ~ 670
	8	610 ~ 740
	9	610 ~ 700
	10	620 ~ 710
	11	590 ~ 660
	12	600 ~ 690
	13	630 ~ 740
	14	620 ~ 720
	15	580 ~ 670
	16	600 ~ 690
	17	630 ~ 740
比 較 例	18	600 ~ 650
	19	640 ~ 700
	20	-
	21	-

【0035】

【表4】

		磁粉特性		
		Br (kG)	iHc (kOe)	(BH)max (MGOe)
実 施 例	6	7.0	6.9	7.1
	7	8.5	2.9	10.8
	8	7.7	3.5	9.5
	13	7.3	4.5	8.9

【0036】

【発明の効果】この発明は、軟磁性相と硬磁性相が混在する低希土類濃度のNd・Fe・B系微細結晶永久磁石の製造方法における製造条件の緩和を図ったもので、希土類元素の含有量が6at%以下と少なく、15at%～30at%のBを含有する特定組成の合金溶湯を、冷却ロールを用いた液体急冷法により急冷合金化するに際し、31kPa～101kPaの不活性ガス雰囲気中にて、急冷することにより、従来、実質90%以上を非晶質化する必要があった液体急冷条件が緩和され、急冷合金の結晶組織が50%以上を占めることが可能な液体急冷条件でも、熱処理後にFe₃B型化合物並びにα-FeとNd₂Fe₁₄B型結晶構造を有する化合物相が共存

して $iH_c \geq 2 \text{ kOe}$ 、 $Br \geq 8 \text{ kG}$ の磁気特性を有する磁石合金が容易に得られる。

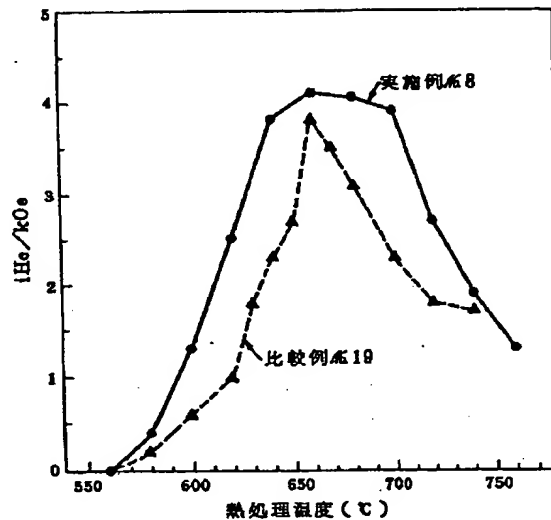
【0037】すなわち、急冷合金の結晶組織が50%以上を占める液体急冷条件でも、磁気特性の劣化を誘因する結晶粒径数100nm以上の $\alpha\text{-Fe}$ の析出が抑制されると共に、その後、550℃～750℃の温度域にて熱処理を施す際、平均結晶粒径10nm～50nmの Fe_3B 型化合物並びに $\alpha\text{-Fe}$ と $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ 型結晶構造を有する化合物相が共存し、 $iH_c \geq 2 \text{ kOe}$ 、 $Br \geq 8 \text{ kG}$ の磁気特性を有する磁石合金を得る微細結晶永

久磁石合金を得られる熱処理温度範囲が拡大することによって、微細結晶永久磁石の製造条件の緩和して安価で安定した工業生産を可能にできるもので、従来、工業生産上、安価で大量に生産することができなかった、ハードフェライト磁石に匹敵する性能対価格比をもつ微細結晶永久磁石を安価で提供できる。

【図面の簡単な説明】

【図1】実施例及び比較例における急冷合金の熱処理温度に対する保磁力の依存性を示すグラフである。

【図1】



THIS PAGE BLANK (USPTO)